

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-259459

(43)Date of publication of application : 29.09.1998

(51)Int.Cl.

C22C 38/00
B22F 1/00
B22F 9/04
C22C 33/02
H01F 1/053
H01F 1/06

(21)Application number : 09-269928

(71)Applicant : MITSUBISHI MATERIALS CORP

(22)Date of filing : 02.10.1997

(72)Inventor : NAGATOMO YOSHIYUKI
OGAWA TAMOTSU
KOMADA KIICHI

(30)Priority

Priority number : 09 4226 Priority date : 14.01.1997 Priority country : JP

(54) RAW MATERIAL ALLOY FOR PRODUCING RARE EARTH MAGNET POWDER AND PRODUCTION OF RARE EARTH MAGNET POWDER USING THIS RAW MATERIAL ALLOY

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a raw material alloy producing rare earth magnet powder having excellent magnetic properties by composing the intergranular precipitates of a raw material alloy in which the componental compsn. and structure are specified of intermetallic compound phases and boride phases.

SOLUTION: A raw material alloy for producing rare earth magnet powder having a compsn. contg., by at.%, 10.0 to 16.0% rare earth element including Y (R), 5.0 to 30.0% Co or Ni (T), 4.0 to 10.0% B, one or more kinds among Zr, Hf, Ti and Ni (M1) by 0.001 to 3.0% one or more kinds among Ga, Al and Sn (M2) by 0.001 to 5.0%, and the balance Fe with inevitable impurities and consisting of the main phases composed of R2 (Fe, T)14B type intermetallic compound phases in which M1 and M2 are partially allowed to enter into solid solutions and intergranular precipitates precipitated into the boundaries of the crystal grains thereof is prepd. This intergranular precipitates are composed of Ra(Fe, T)100-a intermetallic compound phases, RbT100-b intermetallic compound phases, M1cB100-c boride phases, RdTeM2100-(d+e) intermetallic compound phases and Rf(Fe, T)gB100-(f+g) intermetallic compound phases.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-2594

(43) 公開日 平成10年(1998) 9月

(51) Int. Cl.⁶

識別記号

P I

C 2 2 C 38/00

3 0 3

C 2 2 C 38/00

3 0 3 D

B 2 2 F 1/00

B 2 2 F 1/00

Y

9/04

9/04

D

C

C 2 2 C 33/02

C 2 2 C 33/02

H

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 12 頁) 最終頁に

(21) 出願番号

特願平9-269928

(22) 出願日

平成9年(1997)10月2日

(31) 優先権主張番号

特願平9-4226

(32) 優先日

平9(1997)1月14日

(33) 優先権主張国

日本 (J P)

(71) 出願人 000006264

三菱マテリアル株式会社

東京都千代田区大手町1丁目5番1号

(72) 発明者 長友 義幸

埼玉県大宮市北袋町1-297 三菱マテ

アル株式会社総合研究所内

(72) 発明者 小川 保

埼玉県大宮市北袋町1-297 三菱マテ

アル株式会社総合研究所内

(72) 発明者 駒田 紀一

埼玉県大宮市北袋町1-297 三菱マテ

アル株式会社総合研究所内

(74) 代理人 弁理士 宮田 和夫 (外1名)

(54) 【発明の名称】 希土類磁石粉末製造用原料合金およびこの原料合金を用いた希土類磁石粉末の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 希土類磁石粉末を製造するための原料合金を提供する。

【解決手段】 Yを含む希土類元素をR、CoまたはNiをT、Zr、Hf、TiおよびNbの内の少なくとも1種以上をM1、Ga、AlおよびSnの内の少なくとも1種以上をM2で示し、さらにa~gの単位を原子%とすると、R-T-B-M1-M2系原料合金の結晶粒界析出物が、R_a(Fe, T)_b... (30.0<a<40.0) 金属間化合物組 R_aT_b... (65.0<

【特許請求の範囲】

【請求項1】 Yを含む希土類元素（以下、Rで示す）：10.0～16.0原子%、
CoまたはNi（以下、Tで示す）：5.0～30.0原子%、

B：4.0～10.0原子%、

Zr、Hf、TiおよびNbの内の少なくとも1種（以下、M1で示す）：0.001～3.0原子%、

Ga、AlおよびSnの内の少なくとも1種（以下、M2で示す）：0.001～5.0原子%、を含み、残部：Feおよび不可避不純物からなる成分組成を有し、かつM1およびM2が一部固溶しているR₂（Fe、T）_{1-x}B型金属間化合物相からなる主相の結晶粒とその結晶粒の粒界に析出している粒界析出物からなる組織を有する原料合金において、前記粒界析出物は、a～gの単位を原子%とすると、

R_a（Fe、T）_{1-x}（30.0<a<40.0）金属間化合物相、

R_bT_{1-x}（65.0<b<75.0）金属間化合物相、

M1_cB_{1-x}（30.0<c<40.0）ホウ化物相、

R_dT_eM2_{1-x}（60.0<d<70.0、20.0<e<30.0、85.0<d+e<99.9）金属間化合物相、およびR_f（Fe、T）_{1-x}B_{1-x}（10.0<f<15.0、40.0<g<50.0、50.0<f+g<65.0）金属間化合物相で構成されていることを特徴とする希土類磁石粉末製造用原料合金、

【請求項2】 前記粒界析出物の内のM1_cB_{1-x}（30.0<c<40.0）ホウ化物相は凸レンズ形状を有しており、R_dT_eM2_{1-x}（60.0<d<70.0、20.0<e<30.0、85.0<d+e<99.9）金属間化合物相はR_fT_{1-x}（65.0<b<75.0）金属間化合物相内の周縁部に偏在していることを特徴とする請求項1記載の希土類磁石粉末製造用原料合金、

【請求項3】 R：10.0～16.0原子%、
T：5.0～30.0原子%、
B：4.0～10.0原子%、

相、

M1_cB_{1-x}（30.0<c<40.0）、およびR_f（Fe、T）_{1-x}B_{1-x}（10.0<f<15.0、40.0<g<50.0、50.0<f+g<65.0）金属間化合物相で構成されていることを特徴とする希土類磁石粉末製造用原料合金、

【請求項4】 前記粒界析出物のM1_cB_{1-x}（30.0<c<40.0）ホウ化物相は凸レンズ形していることを特徴とする請求項3記載の希土類磁石粉末製造用原料合金、

【請求項5】 R：10.0～16.0原子%、
T：5.0～30.0原子%、
B：4.0～10.0原子%、
M2：0.001～5.0原子%、を含み、残部および不可避不純物からなる成分組成を有し、かつ一部固溶しているR₂（Fe、T）_{1-x}B型金属間化合物相からなる主相の結晶粒とその結晶粒の粒界に析出している粒界析出物からなる組織を有する原料合金で、前記粒界析出物は、a～gの単位を原子%とすると、

R_a（Fe、T）_{1-x}（30.0<a<40.0）金属間化合物相、

R_bT_{1-x}（65.0<b<75.0）金属間化合物相、

R_dT_eM2_{1-x}（60.0<d<70.0、20.0<e<30.0、85.0<d+e<99.9）金属間化合物相、およびR_f（Fe、T）_{1-x}B_{1-x}（10.0<f<15.0、40.0<g<50.0、50.0<f+g<65.0）金属間化合物相で構成されていることを特徴とする希土類磁石粉末製造用原料合金、

【請求項6】 前記粒界析出物のR_dT_eM2_{1-x}（60.0<d<70.0、20.0<e<30.0、85.0<d+e<99.9）金属間化合物相はR_fT_{1-x}（65.0<b<75.0）金属間化合物相内の周縁部に偏在していることを特徴とする請求項5記載の希土類磁石粉末製造用原料合金、

【請求項7】 請求項1、2、3、4、5または6記載の希土類磁石粉末製造用原料合金に、500～1000℃の水素中で水素を吸蔵させ、引き続いて500℃

【発明の属する技術分野】この発明は、優れた磁気特性を有する希土類磁石粉末を製造するための原料合金およびその原料合金を使用してさらに一層優れた磁気特性を有する希土類磁石粉末を製造する方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】微細な希土類金属間化合物相の集合組織からなる希土類磁石粉末を製造するには、 R_2Fe_2B 金属間化合物相を主相とするインゴットの R_2Fe_2B 相に500～1000℃の水素中で水素を吸蔵させて、 RH_2 、 Fe および Fe_2B の3相に相変態させ、続けて同じ温度領域の真空雰囲気中に保持し脱水素を行った後、不活性ガス雰囲気中で高温に冷却し、ついで粉砕すると、上記水素吸蔵により発生した RH_2 、 Fe および Fe_2B の3相は脱水素により R_2Fe_2B 相に再変態し、微細な R_2Fe_2B 金属間化合物の再結晶集合組織を有する磁気特性に優れた希土類磁石粉末が得られる。この製法は、水素化 (Hydrogenation)、相分解 (Decomposition)、脱水素化 (Desorption) および再結合 (Recombination) の工程からなることから HDDR 処理と呼ばれている。

【0003】この HDDR 処理される原料合金として、Yを含む希土類元素 (以下、Rで示す) : 10.0～16.0原子%、CoまたはNi (以下、Tで示す) : 5.0～30.0原子%、B : 4.0～10.0原子%、Zr、Hf、TiおよびNbの内の少なくとも1種以上 (以下、M1で示す) : 0.001～3.0原子%、Ga、AlおよびSnの内の少なくとも1種以上 (以下、M2で示す) : 0.001～5.0原子%を含み、残部 : Feおよび不可避不純物からなる成分組成を有し、かつM1およびM2が一部固溶している $R_2(Fe,T)_{1-x}M_x$ 型金属間化合物相からなる主相の結晶粒とその結晶粒の粒界に析出している粒界析出物からなる組織を有する原料合金 [以下、この原料合金をR-(Fe,T)-M1-M2系原料合金という] が使用されることも知られている。

【0004】また、HDDR処理される原料合金として、R : 10.0～16.0原子%、T : 5.0～30.0原子%、B : 4.0～10.0原子%、M1 : 0.001～3.0原子%を含み、残部 : Feおよび不

可避不純物からなる成分組成を有し、かつM2が溶している $R_2(Fe,T)_{1-x}M_x$ 型金属間化合物相からなる主相の結晶粒とその結晶粒の粒界に析出している粒界析出物からなる組織を有する原料合金 [以下、原料合金をR-(Fe,T)-M2系原料合金といふ] 使用されることも知られている。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】前記R-(Fe-T)-M1-M2系原料合金、R-(Fe,T)-M1-M2系原料合金またはR-(Fe,T)-M2系原料合金0℃～1000℃の温度範囲で水素吸蔵処理し、きその温度範囲で脱水素処理するHDDR処理をも十分な磁気異方性を示さず、したがって、十分特性を有する希土類磁石粉末は得られなていない

【0007】

【課題を解決するための手段】そこで、本発明者従来よりも一層磁気特性に優れた希土類磁石粉末べく研究を行った結果、HDDR処理して得られ希土類磁石粉末の磁気特性は、使用する原料合金の組織に結晶粒界の析出物が大きく影響を及ぼし、(a) (Fe,T)-M1-M2系原料合金の組織を、およびM2が一部固溶している $R_2(Fe,T)_{1-x}M_x$ 金属間化合物相からなる主相の結晶粒とその結晶粒に析出している粒界析出物からなる組織を有する (Fe,T)-M1-M2系原料合金において、界析出物が $R_2(Fe,T)_{1-x}M_x$ 金属間化合物相、 $T_{1-x}M_x$ 金属間化合物相、M1、B、 $Fe_{1-x}M_x$ ホウ相、 $R_2T_2M_2$ 、 $Fe_{1-x}M_x$ 金属間化合物相および (Fe,T)、 $B_{1-x}M_x$ 金属間化合物相 (但0.0<a<40.0、65.0<b<75.0、0.0<c<40.0、60.0<d<70.0、0.0<e<30.0、85.0<d+e<99.0、0.0<f<15.0、40.0<g<50.0、0.0<f+g<65.0) (a～gの単位は原以下同じ) で構成されているR-(Fe,T)-M2系原料合金を HDDR 処理すると、従来より磁気異方性にすぐれた磁石粉末が得られる、(b) (Fe,T)-M1系原料合金の組織を、M1が溶している $R_2(Fe,T)_{1-x}M_x$ 型金属間化合物相からなる主相の結晶粒とその結晶粒の粒界に析出して

石粉末が得られる、(c) R-(Fe, T)-M2系原料合金の組織を、M2が一部固溶している $R_2(Fe, T)_{1-x}$ B型金属間化合物相からなる主相の結晶粒とその結晶粒の粒界に析出している粒界析出物からなる組織を有するR-(Fe, T)-M2系原料合金において、前記粒界析出物が $R_2(Fe, T)_{1-x}$ 金属間化合物相、 R_bT_{1-x-b} 金属間化合物相、 $R_aT_cM2_{1-x-a-c}$ 金属間化合物相および $R_2(Fe, T)_x$ B金属間化合物相(但し、 $30.0 < a < 40.0$ 、 $65.0 < b < 75.0$ 、 $60.0 < d < 70.0$ 、 $20.0 < e < 30.0$ 、 $85.0 < d+e < 99.9$ 、 $10.0 < f < 15.0$ 、 $40.0 < g < 50.0$ 、 $50.0 < f+g < 65.0$)で構成されているR-(Fe, T)-M2系原料合金をHDDR処理すると、従来よりも一層磁気異方性にすぐれた磁石粉末が得られる、という研究結果を得たのである。

【0008】この発明は、かかる研究結果に基づいてなされたものであって、(1) R-(Fe, T)-M1-M2系原料合金の組織を、M1およびM2が一部固溶している $R_2(Fe, T)_{1-x}$ B型金属間化合物相からなる主相の結晶粒とその結晶粒の粒界に析出している粒界析出物からなる組織を有するR-(Fe, T)-M1-M2系原料合金において、前記粒界析出物が $R_2(Fe, T)_{1-x}$ ($30.0 < a < 40.0$)金属間化合物相、 R_bT_{1-x-b} ($65.0 < b < 75.0$)金属間化合物相、 $M1_cB_{1-x-c}$ ($30.0 < c < 40.0$)ホウ化物相、 $R_dT_eM2_{1-x-d-e}$ ($60.0 < d < 70.0$ 、 $20.0 < e < 30.0$ 、 $85.0 < d+e < 99.9$)金属間化合物相、および $R_2(Fe, T)_x$ 、 B_{1-x} ($10.0 < f < 15.0$ 、 $40.0 < g < 50.0$ 、 $50.0 < f+g < 65.0$)金属間化合物相で構成されている希土類磁石粉末製造用原料合金、

(2) R-(Fe, T)-M1系原料合金の組織を、M1が一部固溶している $R_2(Fe, T)_{1-x}$ B型金属間化合物相からなる主相の結晶粒とその結晶粒の粒界に析出している粒界析出物からなる組織を有するR-(Fe, T)-M1系原料合金において、前記粒界析出物が $R_2(Fe, T)_{1-x}$ ($30.0 < a < 40.0$)金属間化合物相、 R_bT_{1-x-b} ($65.0 < b < 75.0$)金属間化合物相、 $M1_cB_{1-x-c}$ ($30.0 < c < 40.0$)

化合物相、 R_bT_{1-x-b} ($65.0 < b < 75.0$)金属間化合物相、 $R_dT_eM2_{1-x-d-e}$ ($60.0 < d < 70.0$ 、 $20.0 < e < 30.0$ 、 $85.0 < d+e < 99.9$)金属間化合物相、および $R_2(Fe, T)_x$ 、 B_{1-x} ($10.0 < f < 15.0$ 、 $40.0 < g < 50.0$ 、 $50.0 < f+g < 65.0$)金属間化合物相で構成されている希土類磁石粉末製造合金、に特徴を有するものである。

【0009】前記粒界析出物を構成する $M1_cB_{1-x-c}$ ($30.0 < c < 40.0$)ホウ化物相は凸レンスを有しており、この凸レンズ形状を有する $M1_cB_{1-x-c}$ ($30.0 < c < 40.0$)ホウ化物相の顕微鏡組織は、長径が $1 \sim 50 \mu m$ 、短径が $0 \sim 10 \mu m$ の寸法を有している。さらに、前記粒界析出物を構成する $R_dT_eM2_{1-x-d-e}$ ($60.0 < d < 70.0$ 、 $20.0 < e < 30.0$ 、 $85.0 < d+e < 99.9$)金属間化合物相は、 R_bT_{1-x-b} ($65.0 < b < 75.0$)金属間化合物相内の周縁部に

【0010】前記組織を有するこの発明の希土類金製造用原料合金は、R-(Fe, T)-M1-M2系原料合金のインゴット、R-(Fe, T)-M1合金のインゴットまたはR-(Fe, T)-M2合金のインゴットに施す熱処理を改良することになることができる。この発明の希土類磁石合金製造合金を製造する一つの具体的方法は、前記インゴットをAr雰囲気中、昇温速度： $5 \sim 10^\circ C/min$ でし、Ar雰囲気中、温度： $1000 \sim 1200^\circ C$ 50時間保持した後、冷却速度： $2 \sim 4^\circ C/min$ で温度： $550 \sim 650^\circ C$ まで冷却してその温度に0.5～2時間保持し、さらにAr雰囲気中、 $470 \sim 500^\circ C$ 未満まで冷却速度： $2 \sim 4^\circ C/min$ で冷却した温度に0.5～2時間保持し、さらにAr雰囲気中、 $50 \sim 470^\circ C$ 未満まで冷却速度： $2 \sim 4^\circ C/min$ で冷却した後その温度に0.5～2時間保持し、さらにAr雰囲気中、冷却速度： $2 \sim 4^\circ C/min$ で温度： $0 \sim 250^\circ C$ まで冷却した後その温度に0.5～2時間保持し、最終的にAr雰囲気中で室温まで冷却速度： $4^\circ C/min$ で冷却することにより得られる。しこの発明はこの方法に限定されるものではない。

さらに第二冷却速度：1～4℃/min. で室温まで冷却することにより一層優れた磁気特性を有する希土類磁石粉末が得られることが分かったのである。

【0012】したがって、この発明は、前記(1)～(3)記載の希土類磁石粉末製造用原料合金を、500～1000℃の水素中で水素を吸蔵させ、引き続いて500～1000℃の真空雰囲気中に保持し脱水素を行った後、不活性ガス雰囲気中で第一冷却速度：5～15℃/min. で冷却し、300～400℃の範囲内の中間温度に30～60分保持した後、さらに第二冷却速度：1～4℃/min. で室温まで冷却し、ついで粉碎する希土類磁石粉末の製造方法およびこの製造方法で得られ*

*た希土類磁石粉末、に特徴を有するものである。

【0013】

【発明の実施の形態】R-(Fe, T)-M1-原料合金として表1の成分組成を有する合金a～意し、R-(Fe, T)-M1系原料合金として成分組成を有する合金m～pを用意し、さらにR e, T)-M2系原料合金として表1の成分組成る合金q～sを用意し、この合金a～sをAr雰囲気プラズマアーク溶解炉にて溶解し、上記合金a～湯を鑄造してインゴットを作製した。

【0014】

【表1】

種別	合金組成 (原子%)
合	a Nd:12.0%, Fe:b a f, Co:19.0%, B:7.5%, Zr:0.1%, Ga:0.9%
	b Nd:13.4%, Fe:b a f, Co:19.5%, B:7.8%, Hf:0.2%, Ga:0.5%
	c Nd:11.9%, Fe:b a f, Ni:16.5%, B:6.5%, Ti:0.1%, Ga:0.4%
	d Nd:12.5%, Fe:b a f, Co:11.4%, B:7.0%, Nb:0.5%, Ga:0.3%
	e Nd:12.8%, Fe:b a f, Co:14.7%, B:6.0%, Zr:0.2%, Al:0.5%
	f Nd:12.7%, Fe:b a f, Co:28.4%, B:7.1%, Hf:0.2%, Al:0.3%
	g Nd:14.5%, Fe:b a f, Co:26.7%, B:5.0%, Ti:0.3%, Al:0.1%
	h Nd:13.6%, Fe:b a f, Ni:11.0%, B:8.0%, Nb:1.2%, Al:0.1%
	i Nd:13.2%, Fe:b a f, Ni:10.3%, B:9.5%, Zr:0.5%, Sn:2.5%
	j Nd:12.8%, Fe:b a f, Co:18.1%, B:7.0%, Hf:0.3%, Sn:3.8%
金	k Nd:12.7%, Fe:b a f, Co:14.0%, B:6.8%, Ti:2.3%, Sn:2.7%
	l Nd:14.2%, Fe:b a f, Ni:11.0%, B:7.5%, Nb:1.4%, Sn:1.0%
	m Nd:13.0%, Fe:b a f, Co:17.4%, B:6.2%, Zr:0.2%
	n Nd:12.8%, Fe:b a f, Co:18.0%, B:7.2%, Hf:0.1%
	o Nd:15.0%, Fe:b a f, Ni:10.3%, B:8.4%, Ti:2.5%
	p Nd:14.6%, Fe:b a f, Co:20.8%, B:7.2%, Nb:0.8%
	q Nd:12.7%, Fe:b a f, Co:19.8%, B:6.1%, Ga:0.5%
	r Nd:14.2%, Fe:b a f, Co:21.7%, B:7.8%, Al:0.3%
	s Nd:15.2%, Fe:b a f, Ni:11.5%, B:8.6%, Sn:4.5%

【0015】実施例1～19

これら合金a～sのインゴットをAr雰囲気中、昇温速度：10℃/minで昇温し、Ar雰囲気中、温度：1100℃で10時間保持し、その後Ar雰囲気中で冷却速度：3℃/minで600℃まで冷却した後その温度に1時間保持し、さらにAr雰囲気中、冷却速度：3℃/minで温度：500℃まで冷却した後その温度に1時間保持し、さらにAr雰囲気中、冷却速度：3℃/m

40 温度：200℃まで冷却した後その温度に2時し、最終的にAr雰囲気中で室温まで冷却速度：3inで冷却することにより本発明希土類磁石粉末原料合金（以下、本発明原料合金と云う）1～1製し、得られた本発明原料合金1～19の主相の粒界に析出している粒界析出物をE PMA (Xクロアナライザ)により特定し、その結果を表2表3に示した。

種別	イロ ン合 成 法	検 界 析 出 物 (a~gは原子%)				
		Ra (Fe, T) 100-a	Rb T 100-b	M1 c 5 100-c	Rd Te M2 100-(d+e)	Rf (Fe, T) 2 5 100-(f+g)
1	a	Nd 35.1 Co 33.1 Fe 31.8	Nd 71.9 Co 28.1	Zr 31.4 B 68.6	Nd 64.8 Co 24.0 Ga 11.2	Nd 13.3 Co 12.9 B 41.5 Fe 34.2
2	b	Nd 35.0 Co 33.5 Fe 31.5	Nd 72.0 Co 28.0	Hf 31.3 B 68.7	Nd 64.3 Co 24.9 Ga 10.9	Nd 13.3 Co 11.0 B 41.3 Fe 34.4
3	c	Nd 32.8 Ni 31.8 Fe 35.4	Nd 71.1 Ni 28.9	Ti 32.1 B 67.6	Nd 65.1 Ni 25.1 Ga 9.2	Nd 13.2 Ni 12.0 B 42.1 Fe 32.7
4	d	Nd 32.0 Co 32.5 Fe 33.5	Nd 68.3 Co 31.7	Nb 34.1 B 65.9	Nd 64.2 Co 24.9 Ga 10.9	Nd 13.8 Co 10.2 B 41.5 Fe 34.5
5	e	Nd 33.4 Co 33.2 Fe 33.4	Nd 69.7 Co 30.3	Zr 33.4 B 66.6	Nd 63.8 Co 25.6 Al 18.6	Nd 14.0 Co 9.3 B 43.2 Fe 32.5
6	f	Nd 35.1 Co 33.5 Fe 31.4	Nd 72.8 Co 27.2	Hf 34.5 B 65.5	Nd 67.1 Co 22.9 Al 9.0	Nd 12.7 Co 10.7 B 40.5 Fe 35.7
7	g	Nd 37.0 Co 32.1 Fe 30.9	Nd 72.4 Co 27.6	Ti 34.1 B 65.9	Nd 65.5 Co 26.5 Al 7.0	Nd 13.0 Co 10.5 B 41.2 Fe 34.5
8	h	Nd 33.1 Ni 33.5 Fe 33.4	Nd 67.3 Ni 32.7	Nb 32.8 B 67.2	Nd 64.8 Ni 28.1 Al 7.1	Nd 13.3 Ni 9.2 B 43.7 Fe 33.8
9	i	Nd 33.9 Ni 32.1 Fe 30.0	Nd 68.8 Ni 31.2	Zr 30.5 B 69.5	Nd 65.7 Ni 24.9 Sn 9.4	Nd 13.4 Ni 8.9 B 42.1 Fe 35.6
10	j	Nd 34.8 Co 32.8 Fe 32.6	Nd 71.2 Co 28.8	Hf 33.5 B 66.5	Nd 65.9 Co 28.9 Sn 4.2	Nd 14.1 Co 11.2 B 41.6 Fe 33.1

本 発 明 原 料 合 金

種別	イの 合金 ポ ット	析 出 物 (a~gは原子%)				
		Ra (Fe, T) 100-a	RbT 100-b	M1cB 100-c	RdT eM2 100-(d+e)	Rf (Fe, T) gB 100-(fg)
11	k	Nd _{34.6} Co _{33.1} Fe _{32.3}	Nd _{71.5} Co _{28.5}	Ti _{35.4} B _{64.6}	Nd _{64.2} Co _{25.8} Sn _{10.2}	Nd _{13.9} Co _{11.5} B _{42.1} Fe _{32.5}
12	l	Nd _{35.7} Ni _{32.9} Fe _{31.7}	Nd _{70.3} Ni _{29.7}	Nb _{32.7} B _{67.3}	Nd _{63.8} Ni _{28.1} Sn _{7.1}	Nd _{13.7} Ni _{8.6} B _{43.5} Fe _{34.2}
13	m	Nd _{35.1} Co _{33.1} Fe _{31.8}	Nd _{71.9} Co _{28.1}	Zr _{31.4} B _{68.6}	-	Nd _{13.3} Co _{10.9} B _{41.5} Fe _{34.2}
14	n	Nd _{32.9} Co _{31.4} Fe _{35.7}	Nd _{72.6} Co _{27.4}	Hf _{38.2} B _{61.8}	-	Nd _{13.2} Co _{10.7} B _{41.2} Fe _{34.9}
15	o	Nd _{33.3} Ni _{32.7} Fe _{34.0}	Nd _{71.0} Ni _{29.0}	Ti _{34.0} B _{66.0}	-	Nd _{13.5} Ni _{9.7} B _{41.5} Fe _{35.3}
16	p	Nd _{34.8} Co _{31.6} Fe _{33.6}	Nd _{68.3} Co _{31.7}	Nb _{32.8} B _{67.2}	-	Nd _{13.7} Co _{12.0} B _{43.0} Fe _{31.3}
17	q	Nd _{35.1} Co _{32.1} Fe _{31.8}	Nd _{71.9} Co _{28.1}	-	Nd _{64.8} Co _{24.0} Ga _{11.2}	Nd _{13.3} Co _{10.9} B _{41.5} Fe _{34.2}
18	r	Nd _{31.5} Co _{33.5} Fe _{35.0}	Nd _{69.9} Co _{30.1}	-	Nd _{65.4} Co _{24.8} Al _{9.8}	Nd _{13.6} Co _{11.2} B _{41.2} Fe _{34.0}
19	s	Nd _{32.8} Ni _{32.9} Fe _{34.3}	Nd _{74.2} Ni _{25.8}	-	Nd _{63.9} Ni _{28.8} Sn _{7.3}	Nd _{13.8} Ni _{10.5} B _{41.5} Fe _{34.2}

【0018】この発明の希土類磁石粉末製造用原料合金の粒界析出部分の組織を一層具体的に説明する。この発明のR-(Fe, T)-M1-M2系原料合金の内の代表的合金である本発明原料合金1の顕微鏡組織の写生図を図1に示す。図1に示されるように、本発明原料合金1はZrおよびGaが一部固溶している主相(Nd_{...} 40

部分の顕微鏡組織の写生図を図2に示す。図2に示されるように、本発明原料合金13はZrが一部固溶する主相(Nd_{12.1}Co_{10.2}B_{41.5}Zr_{0.5}Fe_{34.2} 間化合物相)の結晶粒とその結晶粒の粒界に析出する粒界析出物からなる組織を有し、前記粒界析出 40 Nd_{...}Co_{...}Fe_{...}金属間化合物相、Nd

析出物は、 $\text{Nd}_{0.11}\text{Co}_{0.11}\text{Fe}_{0.11}$ 金属間化合物相、 $\text{Nd}_{0.11}\text{Co}_{0.11}$ 金属間化合物相、 $\text{Nd}_{0.11}\text{Co}_{0.11}\text{Ga}_{0.11}$ 金属間化合物相、 $\text{Nd}_{0.11}\text{Co}_{0.11}\text{B}_{0.11}\text{Fe}_{0.11}$ 金属間化合物相で構成されていることがわかる。

【0021】さらに、図1～図3から、 $\text{M1}_{0.11}\text{B}_{0.11}\text{c}$ ($30.0 < c < 40.0$) ホウ化物相の一例の $\text{Zr}_{0.11}\text{B}_{0.11}$ ホウ化物相は凸レンズ形状をしており、また $\text{R}_0\text{T}_0\text{M2}_{0.11}\text{c}$ ($60.0 < d < 70.0$, $20.0 < e < 30.0$, $85.0 < d+e < 99.9$) 金属間化合物相の一例の $\text{Nd}_{0.11}\text{Co}_{0.11}\text{Ga}_{0.11}$ 金属間化合物相は $\text{R}_0\text{T}_0\text{M2}_{0.11}$ ($65.0 < b < 75.0$) 金属間化合物相内の周縁部に偏在していることもわかる。

【0022】表1の成分組成および表2～表3の粒界析出物を有する本発明原料合金1～19のインゴットを1気圧の水素雰囲気中、850℃に1時間保持の水素化処理を施した後、温度を850℃に保持しながらArで5分間雰囲気置換し、引き続いて真空中で850℃に保持しながら脱水素処理を行った。その後、真空度が $7.0 \times 10^{-4} \text{ Torr}$ に達したのを確認してArガスで室温まで冷却した。これら水素処理および脱水素処理を施し*

*た本発明原料合金1～19のインゴットを500アンダーに粉砕して希土類磁石粉末を作製し、得られた希土類磁石粉末に対して3.0重量%のエポキシ樹脂を混練し、20kOeの磁場中で成形圧力：6.0t/cm²で圧縮成形し、得られた成形体を大気中、温度：50℃で1時間保持の硬化処理を行うことによりボンを作製した。このようにして得られたボンド磁石特性をB-Hループトレーサーを用いて測定し、結果を表4～表5に示した。

10 【0023】従来例1～19

表1に示される合金a～sのインゴットにそのまゝ例1～19と同じ水素処理および脱水素処理を施し、500μmアンダーに粉砕して得られた希土類磁石に対して3.0重量%のエポキシ樹脂を混練し、20kOeの磁場中で成形圧力：6.0t/cm²で圧縮成形し、得られた成形体を大気中、温度：50℃で1時間保持の硬化処理を行い、これによって得られたボンの磁気特性をB-Hループトレーサーを用いて測定し、その結果を表4～表5に示した。

20 【0024】

【表4】

種 別		使用した原料合金	ボンド磁石の磁気特性		
			B _r (kG)	μH _c (kG)	BH _{max} (MGOe)
実施例	1	本発明原料合金1	9.9	13.5	22.8
従来例		従来原料合金1	9.4	13.8	19.5
実施例	2	本発明原料合金2	9.6	12.2	20.7
従来例		従来原料合金2	9.2	12.4	18.8
実施例	3	本発明原料合金3	9.2	13.7	18.2
従来例		従来原料合金3	8.8	13.9	16.9
実施例	4	本発明原料合金4	9.5	12.6	20.2
従来例		従来原料合金4	9.0	12.8	18.1
実施例	5	本発明原料合金5	8.3	13.2	19.0
従来例		従来原料合金5	8.8	13.5	17.6
実施例	6	本発明原料合金6	9.3	12.5	18.9
従来例		従来原料合金6	8.8	12.8	17.2
実施例	7	本発明原料合金7	9.0	12.9	18.0
従来例		従来原料合金7	8.7	13.1	16.3

種 別		使用した原料合金	ボンド磁石の磁気特性		
			B _r (kG)	H _c (kOe)	B _{Hmax} (MGoe)
実施例	11	本発明原料合金11	9.3	11.5	19.1
従来例		従来原料合金11	8.7	12.0	16.8
実施例	12	本発明原料合金12	8.8	11.2	17.2
従来例		従来原料合金12	8.3	11.6	15.3
実施例	13	本発明原料合金13	9.7	12.3	21.1
従来例		従来原料合金13	9.2	12.7	18.9
実施例	14	本発明原料合金14	9.7	11.8	21.4
従来例		従来原料合金14	9.3	11.9	19.1
実施例	15	本発明原料合金15	8.8	11.4	17.3
従来例		従来原料合金15	8.4	10.7	15.5
実施例	16	本発明原料合金16	9.6	11.4	20.6
従来例		従来原料合金16	9.1	11.8	18.3
実施例	17	本発明原料合金17	9.8	13.6	21.7
従来例		従来原料合金17	9.2	13.7	18.9
実施例	18	本発明原料合金18	9.2	13.8	18.9
従来例		従来原料合金18	8.8	13.2	17.1
実施例	19	本発明原料合金19	8.7	12.8	18.9
従来例		従来原料合金19	8.1	12.1	14.3

【0026】表4に示される結果から、本発明原料合金1を使用して製造した希土類磁石粉末のボンド磁石の磁気特性と従来原料合金1を使用して製造した希土類磁石粉末のボンド磁石の磁気特性を比べると、B_rおよびB_{Hmax}が共に向上しているところから、成分組成は同じであっても本発明原料合金1を使用して得られた希土類磁石粉末は、従来原料合金1を使用して得られた希土類磁石粉末に比べて優れた磁気特性を示すことが分かる。

【0027】同様にして、表4～表5に示される結果から、本発明原料合金2～19を使用して製造した希土類磁石粉末のボンド磁石の磁気特性と従来原料合金2～19を使用して製造した希土類磁石粉末のボンド磁石の磁

30 本発明原料合金1～19のインゴットを1気圧の真空中、850℃に1時間保持の水素化処理を施後、温度を850℃に保持しながらArで5分間置換し、引き続いて真空中で850℃に保持しな水素処理を行った。その後、真空度が7.0×10⁻⁵orrに達したのを確認してArガスにより表6に示される第一冷却速度で冷却し、表6～表7にる中間温度に表6～表7に示される時間保持したらに表6～表7に示される第二冷却速度で室温まし、500μmアンダーに粉砕して本発明法による希土類磁石粉末を作製し、得られた希土類磁石粉末に3.0重量%のエポキシ樹脂を混練し、20kO場中で成形圧力：6.0t/cm²で圧縮成形し、

種別	使用した原料合金	焼成後の冷却条件				ボンド磁石の磁気特性		
		第一冷却速度 (°C/min.)	中間温度 (°C)	保持時間(分)	第二冷却速度 (°C/min.)	Br (kG)	iHc (kOe)	BHmax (MGoe)
実施例	20 本発明原料合金 1	8.3	365	32	2.5	10.0	13.5	23.2
	21 本発明原料合金 2	9.5	395	45	2.1	9.7	12.0	21.4
	22 本発明原料合金 3	11.2	310	57	3.0	9.4	13.3	19.5
	23 本発明原料合金 4	13.6	320	55	1.7	9.6	12.8	21.0
	24 本発明原料合金 5	7.6	330	33	1.5	9.6	13.1	20.8
	25 本発明原料合金 6	9.8	345	35	2.3	9.4	12.5	19.3
	26 本発明原料合金 7	14.2	375	37	3.1	9.3	13.0	19.3
	27 本発明原料合金 8	13.4	365	44	2.1	8.3	13.9	19.0
	28 本発明原料合金 9	9.7	390	36	2.5	9.6	11.9	20.7
	29 本発明原料合金 10	6.5	305	59	2.7	9.7	11.7	21.8

【0030】

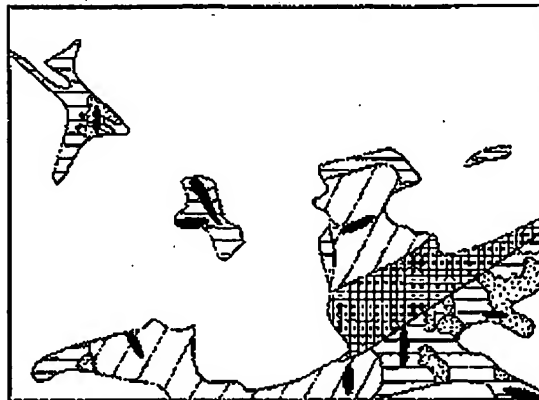
* * 【表7】

種別	使用した原料合金	焼成後の冷却条件				ボンド磁石の磁気特性		
		第一冷却速度 (°C/min.)	中間温度 (°C)	保持時間(分)	第二冷却速度 (°C/min.)	Br (kG)	iHc (kOe)	BHmax (MGoe)
実施例	30 本発明原料合金 11	5.7	310	48	1.5	9.5	11.4	20.5
	31 本発明原料合金 12	9.8	320	51	3.2	9.2	11.0	18.5
	32 本発明原料合金 13	13.2	340	47	2.1	9.8	12.5	22.2
	33 本発明原料合金 14	11.6	230	35	2.5	10.0	11.3	23.1
	34 本発明原料合金 15	14.9	365	36	3.7	9.2	11.9	16.8
	35 本発明原料合金 16	10.0	315	40	1.6	9.7	11.7	21.7
	36 本発明原料合金 17	8.3	335	57	1.2	9.8	13.5	22.0
	37 本発明原料合金 18	7.8	380	50	2.5	9.4	12.8	19.8
	38 本発明原料合金 19	6.5	370	52	3.3	9.6	12.0	20.0

【図4】この発明の希土類磁石粉末製造用原料合金を使用
用して希土類磁石粉末を製造する方法を説明するための*

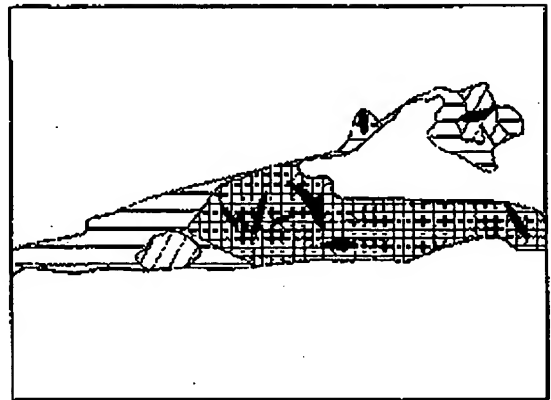
*パターン図である。

【図1】



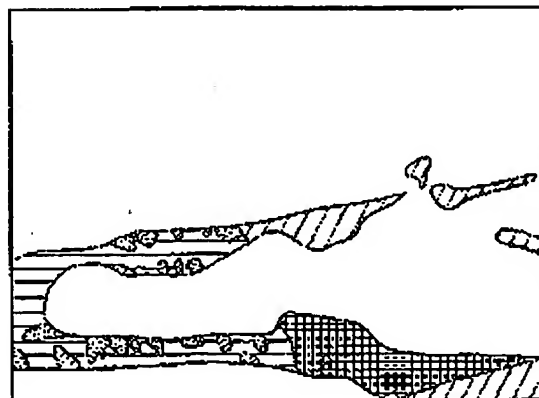
- 主相(Nd_{12.5}Co_{17.2}B_{5.6}Zr_{0.26}Ga_{1.11}Fe_{94.9} 金属間化合物相)
- Nd_{2.1}Co_{2.1}Fe_{21.8} 金属間化合物相
- Nd_{1.6}Co_{2.1} 金属間化合物相
- Nd_{1.5}Co_{2.1}Ga_{1.1} 金属間化合物相
- Zr_{0.14}B_{0.26} 水化物相
- Nd_{13.3}Co_{17.2}B_{5.5}Fe_{94.2} 金属間化合物相

【図2】



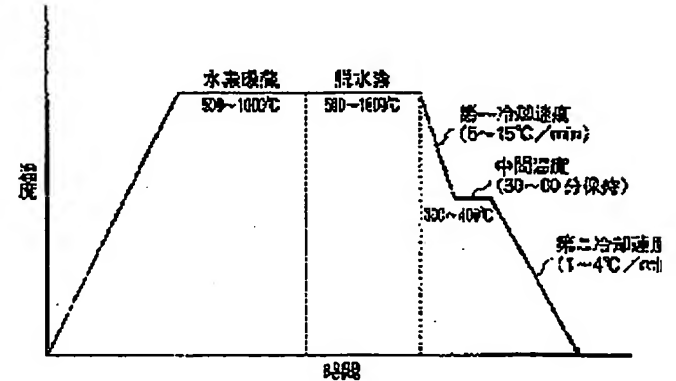
- 主相(Nd_{12.5}Co_{17.2}B_{5.6}Zr_{0.26}Fe_{94.9} 金属間化合物相)
- Nd_{2.1}Co_{2.1}Fe_{21.8} 金属間化合物相
- Nd_{1.6}Co_{2.1} 金属間化合物相
- Zr_{0.14}B_{0.26} 水化物相
- Nd_{13.3}Co_{17.2}B_{5.5}Fe_{94.2} 金属間化合物相

【図3】



- 主相(Nd_{12.5}Co_{17.2}B_{5.6}Ga_{1.1}Fe_{94.55} 金属間化合物相)
- Nd_{2.1}Co_{2.1}Fe_{21.8} 金属間化合物相

【図4】



(12)

特開平10-2594

フロントページの続き

(51)Int.Cl.[°]

識別記号

F I

H 0 1 F 1/053

H 0 1 F 1/04

H

1/06

1/06

A